

PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 PCT2000-1	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/02652	国際出願日 (日.月.年) 24.04.00	優先日 (日.月.年) 23.04.99
出願人 (氏名又は名称) サカセ・アドテック株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は

☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は

☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 1 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.¹ B32B5/28, B29B11/16, C08J5/24

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.¹ B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,
C08J5/04-5/10, C08J5/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2000年

日本国公開実用新案公報 1971-1995年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y ₁	JP, 5-254048, A (旭シュエーベル株式会社) 5. 10 月. 1993 (05. 10. 93) ファミリーなし	1-6
Y ₁	JP, 58-193144, A (株式会社日立製作所) 10. 11 月. 1983 (10. 11. 83) ファミリーなし	1-6
Y ₂	JP, 4-140127, A (三菱重工業株式会社) 14. 5月. 1992 (14. 05. 92) ファミリーなし	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17. 07. 00

国際調査報告の発送日

01.08.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

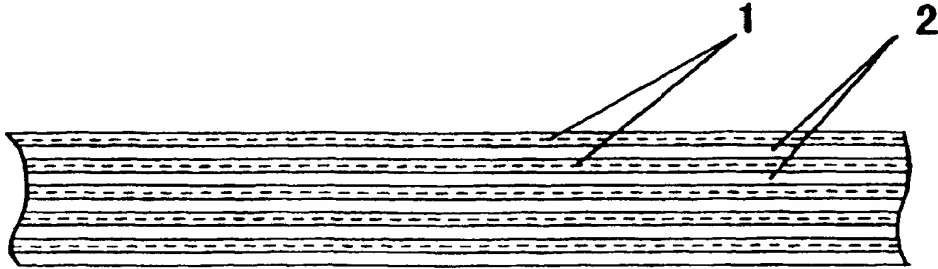
川端 康之

4S

9156

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y ₂	JP, 51-14969, A (富士重工業株式会社) 5. 2月. 1976 (05. 02. 76) ファミリーなし	1-6
Y ₂	JP, 50-12174, A (テー・アール・ダブリュ・インコー ポレイテッド) 7. 2月. 1975 (07. 02. 75) ファミリー なし	1-6
Y ₂	US, 5312670, A (Kuang-Ming Wu, Bri an L. Avery) 17. May. 1994 (17. 05. 9 4) ファミリーなし	1-6
Y ₂	US, 5654077, A (Kuang-Ming Wu, Bri an L. Avery) 5. Aug. 1997 (05. 08. 9 7) ファミリーなし	1-6

(51) 国際特許分類7 B32B 5/28, B29B 11/16, C08J 5/24	A1	(11) 国際公開番号 WO00/64668 (43) 国際公開日 2000年11月2日(02.11.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/02652 (22) 国際出願日 2000年4月24日(24.04.00) (30) 優先権データ 特願平11/116270 1999年4月23日(23.04.99) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) サカセ・アドテック株式会社 (SAKASE ADTECH CO., LTD.)[JP/JP] 〒910-0363 福井県坂井郡丸岡町下安田14-10 Fukui, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 久保村健二(KUBOMURA, Kenji)[JP/JP] 〒921-8163 石川県金沢市横川2丁目97 サンピア横川308 Ishikawa, (JP) 渡邊秋人(WATANABE, Akihito)[JP/JP] 〒910-0363 福井県坂井郡丸岡町下安田14-10 サカセ・アドテック株式会社内 Fukui, (JP)		(74) 代理人 入交孝雄(IRIMAJIRI, Takao) 〒160-0022 東京都新宿区新宿1-24 ルネ御苑プラザ601 Tokyo, (JP) (81) 指定国 JP, US, 欧州特許 (DE, ES, FR, GB, IT) 添付公開書類 国際調査報告書
(54) Title: FIBER-REINFORCED RESIN COMPOSITE MATERIAL HAVING REDUCED COEFFICIENT OF LINEAR EXPANSION (54) 発明の名称 低線膨張係数繊維強化樹脂複合材料 <div style="text-align: center;">  </div> (57) Abstract A fiber-reinforced resin composite material which comprises an in-plane pseudoisotropic plate formed by providing two or more types of reinforcing fibers at least one of which has a negative coefficient of linear expansion, preparing a prepreg sheet comprising a combination of such fibers and laminating such sheets, and is adjusted to have a reduced coefficient of linear expansion, in particular, to have the coefficient of zero. The coefficient of linear expansion of the composite material is adjusted to be as small as possible in the course of manufacture of the material using various means, that is, by yarn doubling or comingling of a combination of two or more types of reinforcing fibers, by combining various prepreg sheets formed from the resultant fiber bundles, by preparing a fiber bundle having a predetermined coefficient by yarn doubling or the like, by changing the three-dimensional structure of doubled fibers, woven fabric or the like, or by a combination of the above.		

繊維強化樹脂複合材料において、線膨張係数を小さく、特に線膨張係数をゼロとなるよう制御するため、少なくとも一つは負の線膨張係数を有する2種以上の強化繊維を組合せることにより、それらからなるプリプレグシートを積層して面内疑似等方性板を形成し、繊維強化樹脂複合材料としたときに線膨張係数をゼロとなるよう調整する。

2種以上の強化繊維の組合せとして、合糸やコミングルにより線膨張率を調整、それぞれの繊維束により形成したプリプレグシートを組合せて線膨張率を調整、プリプレグシートを構成する繊維束を2種以上の強化繊維単独の組合せ、或いは合糸などにより予め線膨張率を調整した繊維束として線膨張率を調整、更に合糸、織物などの立体構造の影響を加え、また更に、これらを組合せてなるものであり、それによって複合材料としての線膨張率が可及的に小さくなるよう調整する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサオ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ヴェトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノールウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュー・ジージーランド		
CZ	チェッコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

低線膨張係数繊維強化樹脂複合材料

技術分野

この発明は、線膨張係数を低減した、特に線膨張係数を実質上零とした繊維強化樹脂材料に関する。

背景技術

従来から繊維強化樹脂複合材料は、強化繊維とマトリックスとなる樹脂の種類の組み合わせを適宜に選ぶことによって、その使用条件に適した物理的、化学的性質を附与することができるため、多くの新たな用途を見出して、広く用いられている。特に、化学変化に強く、腐食環境に耐えることや、一般に比重が小さく強度や剛性が大きくできるため、航空・宇宙環境での構造材や部品など、或いは精密機械部品、土木建設資材やスポーツ用品などにも広く用いられるようになっている。

このような精密機器や温度変化を受ける環境下で使用される部品や構造材として用いる場合、その温度変化に伴う熱膨張が問題となる場合がある。例えば、人工衛星などでは太陽に面した側と陰となる側とでは著しく温度が異なり、交互にこれらの異なる温度環境下に置かれるため熱膨張係数により搭載した精密機器に影響を及ぼすこととなる。その他にも半導体製造機器、光学機器或いは微細加工装置の分野など、熱膨張による影響を極力低減することが求められる。

従来このような用途にはインバー合金や石英ガラス、炭素繊維強化複合材料などの低熱膨張率の材料が用いられているが、それぞれ金属及びシリカ系材料或いは限られた種類の材料であって、材質上用途や、強度・比重・コストなどに自ずと制約がある。そこで、上記したような多様な特性を有する繊維強化樹脂複合材料でこれらの要請に応えるよう線膨張係数を低く抑制することが求められている。

繊維強化樹脂複合材料で線膨張係数を抑制するためには、強化繊維及びマトリックス樹脂を共に線膨張係数の低い、或いは零となる材料を用いれば良いのである

が、強化繊維と樹脂の双方でこのような特性の材料を得ることは实际的ではない。そこで、繊維方向に負の線膨張係数を有する繊維と正の線膨張係数を有する樹脂とを組み合わせ、これらの熱膨張を相殺して打ち消し合うようにすることにより、全体としての線膨張係数を零にする試みが行われている。

- 5 しかしながら、この方法でも双方の材料にこれらの条件に適合した特性のものを得ることは困難であり、亦、これらの繊維強化樹脂複合材料に本来求められる強度や耐熱性などの性質を考慮するとその選択肢は極めて限られたものとならざるを得ない。

- 10 さらに、繊維強化樹脂複合材料の板材や成形品全体としての線膨張を決定するものは、これらの材料物性としての線膨張係数のみではなく、これらの強化繊維とマトリックス樹脂との混合比率によって異なるのであり、強化繊維自体についても単繊維や合糸、撚糸などの相違、プリプレグとしての構造や積層状態、例えば一方向に並べた一方向プリプレグから更に立体的な構造となる2軸織物、3軸織物からなるプリプレグ、フィラメントの構造、或いはそれらの積層構造によつて異なる。

15 本発明者らは、これらの強化繊維の種類の組み合わせ、強化繊維の構造やプリプレグの構造を選ぶことによって繊維強化樹脂複合材料の望ましい特性を保ちつつ、効果的にかつ精密に線膨張係数を抑制できること及びその具体的条件を見出し、本発明に至ったものである。

20 発明の開示

- 25 本発明の繊維強化樹脂複合材料は、少なくとも一つは負の線膨張係数を有する強化繊維を含む二種以上の強化繊維を組み合わせることにより、各々の線膨張係数を調整した一又は二以上の強化繊維からなるシートを組み合わせ、線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料であり、上記二種以上の強化繊維が、単独で或いは合糸され又は混合されてストランドとされているものを用いることができる。

 また、これらの構成において、撚糸、二軸、又は三軸織物等の立体構造によりそれぞれの線膨張係数を調整してなる一又は二以上の強化繊維から成るシートを

組み合わせて、線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料とすることができる。

更に、少なくとも一つは負の線膨張係数を有する、二以上の線膨張係数の異なる強化繊維からそれぞれ形成した線膨張係数の異なる二以上の繊維強化シートを
5 組み合わせて、線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料であり、又、更にこれらの組み合わせからなる線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料とすることができる。そのために、線膨張係数の調整された、ヤーンプリプレグ、一方向プリプレグ、二軸織物・三軸織物又は四軸織物、或いはこれらから形成されたプリプレグを用いることができる。

- 10 強化繊維として、少なくとも一種類を負の線膨張係数を有する材料とし、これと線膨張係数の異なる強化繊維とを組み合わせて繊維強化材料としての線膨張係数を調整することにより、これらの組み合わせる強化繊維の種類を選択肢を広くすることが可能となる。その結果、弾性率や化学的性質が優れていても線膨張係数が正であるため、或いは適当な線膨張係数でなかったためにこれらの用途に使用で
15 きなかった材料も用いることが可能となる。

- 要は、これらの組み合わせられた繊維強化材が単一或いは複数のプリプレグなどの形態で組み合わせられて所定の線膨張係数となるように調整され、その後繊維強化樹脂複合材料として成形されて所定の形態となった状態で線膨張係数が、例えば零となるような所望の範囲に抑制されれば良い。このように組み合わせられてな
20 る強化繊維は、モノフィラメントとしてではなく樹脂に対する強化構造を構成した状態でその線膨張係数とマトリックスとなる樹脂の線膨張係数とが最終的に調整されて、所望の抑制された低線膨張係数となるのであるから、モノフィラメントからこれらの繊維強化構造にいたる段階の構造を考慮して、組み合わせられる強化繊維の線膨張係数を選び、これらの強化繊維の種類や数、及び混合比率等を調
25 整すれば良いのである。

これらの強化繊維の形態は、合糸として組み合わせられてそれらの全体の線膨張係数を調整されていても良く、亦、二種以上の強化繊維を束ねたストランドの形態であっても良い。

また、請求項 3 記載の発明は、これらの構成に加えて強化繊維の立体的な構造により線膨張率が変化することを線膨張率の調整に利用するものである。強化繊維を撚糸として用いるとその撚り合わされた立体構造のため、実質的な長さが長くなり、また膨張収縮に伴って撚りの状態が変わるため、見掛け上その線膨張係数が変化する。従ってこのような撚糸を用いることによって実質的な線膨張係数を
5 変えることができるので、このような撚糸を用いた強化繊維からプリプレグ等を形成することにより、同じ種類の強化繊維を用いて繊維強化構造の線膨張係数を調整することが可能である。同じ様に、プリプレグとして、一方向プリプレグ、二軸方向織物からなるプリプレグ及び三軸織物からなるプリプレグはそれらの立
10 体的な織物構造から実質的な繊維の長さが異なり、またその膨張収縮に伴う形態変化のため見掛けの線膨張係数を変化することとなるから、これらのプリプレグの構造に起因する線膨張係数の相違を考慮して全体としての繊維強化樹脂複合材料の線膨張係数を所定の値に抑制することができる。

更に、請求項 4 記載の発明は、線膨張係数の異なる強化繊維からそれぞれ線膨
15 張係数の異なるシートを形成して、これらを積層して強化構造としての線膨張係数を調整するものである。これらの線膨張率の異なるシートとして、一方向に配列したシート、二軸織物又は三軸織物からなるシートを用いることができる。これらの線膨張率の異なるシートを二以上積層して線膨張係数を調整し、所定組み合わせ数を積層して面内疑似等方性として全体としての繊維強化樹脂複合材料の
20 線膨張係数を所定の値に抑制することができる。

このように、線膨張係数の異なる強化繊維を組合わせ、或いは立体的なシートの構造を変え、線膨張係数の異なる強化繊維から形成したシートを積層することにより線膨張係数を調整して繊維強化樹脂複合材料としての線膨張係数を所定の値にすることができるが、更にこれらの構成を組み合わせることによって、より効
25 果的にかつ容易に線膨張係数を調整することができる。

図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の繊維強化樹脂複合材料の線膨張率を調整する原理図。

図 2 は、線膨張率の異なる強化繊維 A、B を束ねて繊維束とした構造で、図 3 は、異なる線膨張係数を有する強化繊維から成る繊維束により形成したプリプレグシートの例で、(a) は一方向プリプレグシート、(b) は二軸織物プリプレグシート、(c) 三軸織物プリプレグシートである。

- 5 図 4 は、異なる線膨張係数を有する強化繊維を混合して一定の線膨張係数とした繊維束から形成した例で、(a) は一方向プリプレグ、(b) は二軸織物プリプレグシート、(c) は三軸織物プリプレグシートからそれぞれ形成したものである。

発明を実施するための最良の形態

- 10 以下に、図面を参照して本発明の繊維強化樹脂複合材料の具体的構造と実施例を説明する。

- 図 1 は、本発明の二種以上のそれぞれ線膨張率の異なる繊維で構成されるシート 1 及び 2 を組み合わせて積層して面内疑似等方性とし、線膨張係数を所望の値に調整する原理を示すもので、この図では例えば、一方の強化繊維を負の線膨張係数を有する材料からなるものとする。これに対して、他の強化繊維はこれより線膨張係数の大きいものであって良く、これらからなるシート 1 及び 2 を図のように交互に積層して面内疑似等方性となるようにし、これらの積層シートからなる成形体を加熱硬化して繊維強化樹脂複合材料として成形されたときの線膨張係数が零又は所望の値となるように調整する。
- 15

- 20 このように構成することにより、強化繊維各々の線膨張係数とマトリックス樹脂の線膨張係数の選択を容易にし、亦、これらの材料の組み合わせにおいて高弾性率の繊維や化学的特性の優れた強化繊維を線膨張係数の調整に適した材質の強化繊維のものと組み合わせて、最適な特性を得ることができる。

- 図 2 は、二種以上の線膨張係数を異にする強化繊維 A と B とから強化繊維束を形成するもので、これらの二種の強化繊維を混合して束ねて一定の調整された線膨張係数のストランドとしたものである。
- 25

このように繊維束とすることにより、繊維束自体を一定の線膨張係数の材料として扱えるから、これらの繊維束を一方向に配列して一方向プリプレグとしたり、

織物として二軸織物プリプレグや三軸織物プリプレグとして複合材料を形成することができる。従って、これら一定の線膨張係数の繊維束により構成されたこれらのプリプレグを所定数積層して面内疑似等方性の強化構造として、その線膨張係数を調整することができる。

5 図3は、線膨張係数の異なる強化繊維から成る繊維束A、Bを一方向に配列した一方向プリプレグ(a)、二軸織物プリプレグ(b)、三軸織物プリプレグ(c)としたものであり、線膨張係数の異なる繊維束A及びB毎に交互に配列して相互の線膨張係数を併せて所望の線膨張係数となるように調整する。これらの加工工程などは通常の繊維強化樹脂複合材料と変らない。

10 図4(a)～(c)は、図2に示した線膨張係数の異なる強化繊維を混合して一定の線膨張係数とした繊維束3を用いた例で、これらの例では繊維束同士は線膨張率が同じであるため通常の繊維束と同じ様に取り扱うことができる。図4(a)の例では、単繊維径4～50 μm 、繊維数10～100,000本からなるもので、これらを図のように配列して厚さ10～500 μm 、幅1～150cmの一方向プリプレグとする。

図4(b)及び(c)は、それぞれ二軸織物及び三軸織物とした例である。

本発明の強化繊維の組合せについて、以下の材質の強化繊維及びマトリックス樹脂を用いた場合の試算例を示す。

(1) マトリックスに使用したエポキシ系樹脂の特性

20 引張弾性率：360 kg/mm^2

ポアソン比：0.35

熱膨張率：60 $\text{ppm}/^\circ\text{C}$

(2) 強化繊維の特性：以下の表1に強化繊維の種類と線膨張係数、弾性率を示す。

表 - 1 : 強化繊維の種類と引張弾性率及び線膨張係数

繊維の種類	繊維方向の引張弾性率 kgf/mm ²	繊維方向の線膨張係数 × 10 ⁻⁶ /℃
PAN系炭素繊維 (M50J)	48,500	-1
(M60J)	60,000	-1.1
(T300)	23,500	-0.41
(M35J)	35,000	-0.73
ピッチ系炭素繊維 (YS-35)	35,690	-1.1
(YS-60)	61,183	-1.5
(YS-70)	71,972	-1.5
アラミッド繊維 (K149)	19,000	-2
PBO繊維 (ザイロン)	28,500	-6

(注) PBO : ポリパラフェニレンベンゾビスオキサゾール

ザイロン : 東洋紡績 (株) の登録商標

これらの材質の強化繊維により一方向に配列してシートを作成し、一方向性材料としてマトリックス樹脂を含浸して、これらを積層して面内疑似等方性の板状とした場合の線膨張係数は次の式により与えられる。(この計算式及びその詳細は、本発明者が、平成11年4月14日に北陸複合材料セミナーで発表した。)

なお、これらの強化繊維は、一方向シート、二軸・三軸の織物とされ、かつこれらのシートを積層して面内疑似等方性とした上で硬化して複合材とされるが、その場合の複合材中の個々の繊維やシートの線膨張係数はいわばマクロに見ることができるので、これらの構造が相違しても共通に扱うことができる。

すなわち、図2のような繊維束を二種類の線膨張係数の異なる繊維を混合して形成した場合の混合比率、いわゆるハイブリッド率と図3(a)～(c)に示すような二種類の繊維からそれぞれ形成した線膨張係数の異なる繊維束を用いてヤーンプリプレグ、一方向プリプレグ、二軸織物プリプレグ、三軸織物プリプレグ

或いは四軸織物プリプレグとした場合のこれらの繊維の組合せの比率も、同じくハイブリッド率として扱うことができる。

$$\alpha = (E_L * \alpha_L + E_L * \alpha_T + \mu_{LT} * E_L * \alpha_L + \mu_{LT} * E_L * (\alpha_L + \alpha_T)) / (E_L + E_T + 2 \mu_{LT} * E_L)$$

5 なお、式中

E_L : 一方向材の繊維方向の弾性率

E_T : 一方向材の繊維軸と直角方向の弾性率

μ_{LT} : ポアソン比

α_L : 一方向材の繊維方向の線膨張係数

10 α_T : 一方向材の繊維軸と直角方向の線膨張係数である。

これらの一方向材の材料特性は、繊維の種類や樹脂の種類及び繊維の含有率によって決まる。また、これらの強化繊維の特性として、これら以外にも横方向の弾性率など、或いは織物とする場合にはクリンプ率などが影響するが、これらの特性について十分なデータがないほか、その影響度合いも複雑であるため一概に見積もることは困難である。従って、これらの影響については既存のデータから経験的に大略見積り、実際に確認することとした。

(3) 一方向プリプレグと二軸方向織物から形成したプリプレグについて、これらからなるシートを積層してなる面内疑似等方性板は次のようにして形成される。

20 (a) 図1の構造の各層1及び2の2枚の一方向プリプレグからなるプリプレグを2枚一組で、0/90/45/-45/-45/45/90/0度の各方向に積層して面内疑似等方性とする。

(b) 図2の繊維を用いて形成した図4(a)の構造の同じ特性の一方向のプリプレグ8枚を、0/90/45/-45/-45/45/90/0度の各方向に
25 積層して面内疑似等方性とする。

(c) 二軸織物の場合、クリンプ率を小さく製織すると一方向性材と大きな差がなく実用上同様に扱え、二軸織物のシートを0/45/45/0で積層しても同様の値が得られる。なお、この4枚のプリプレグは同じ物で、二種類以上の繊維

の合糸やコミングルか又はそれらの繊維束を交互に組み合せたもので良く、図2の繊維及び図3(b)及び図4(b)の構造のものに相当する。

これらの方法で形成した面内疑似等方性板について、上記の式で計算したハイブリッド率と熱膨張係数との関係を表2に示す

5 表 - 2 : 繊維のハイブリッド率と疑似等方性板の面内熱膨張係数 (単位 : ppm/°C)

繊維の種類		ハイブリッド率 (%) = 繊維 A の重量 / (繊維 A の重量 + 繊維 B の重量) × 100					
繊維 A	繊維 B	0%	20%	40%	60%	80%	100%
M 5 0 J	M 6 0 J	-0.21	-0.14	-0.06	0.02	0.11	0.21
Y S - 3 5	Y S - 6 0	-0.39	-0.24	-0.07	0.18	0.41	0.74
K 1 4 9	Y S - 7 0	-0.55	-0.36	-0.11	0.28	0.93	2.24

(注) 積層方向 : [0 / 9 0 / + 4 5 / - 4 5 / - 4 5 / + 4 5 / 9 0 / 0]

V f = 6 0 %

上記の表2のとおり、ハイブリッド率によって、熱膨張係数に極小値のあることが判る。そこで、これらから外挿して求めた熱膨張係数がゼロとなる強化繊維のハイブリッド率を表3に示す。

表 - 3 : 面内熱膨張係数がゼロの場合の繊維 A と繊維 B の重量比率と弾性率

繊維の種類		繊維の重量 (%)		弾性率 (kg / m m ²)
繊維 A	繊維 B	繊維 A	繊維 B	
M 5 0 J	M 6 0 J	5 5 . 1	4 4 . 9	1 1 , 3 2 8
Y S - 3 5	Y S - 6 0	4 4 . 6	5 5 . 4	1 0 , 6 1 9
K 1 4 9	Y S - 7 0	4 5 . 4	5 3 . 6	1 0 , 0 9 9

(注) V f = 6 0 %

(4) 三軸織物の場合一枚の織物シートで面内疑似等方性が得られるが、この場

合厚さによってクリンプ率が変わるため、厚さ 0.1 mm と 0.2 mm の場合についてそれぞれ検討した。

(a) 表 4 に上記の式によって計算した厚さ 0.1 mm の三軸織物からなる複合材料のハイブリッド率と熱膨張係数との関係を示す。

5 表 - 4 : 繊維のハイブリッド率と三軸織物の面内熱膨張係数 (単位 : ppm/°C)

繊維の種類		ハイブリッド率 (%) = 繊維 A の重量 / (繊維 A の重量 + 繊維 B の重量) × 100					
繊維 A	繊維 B	0%	20%	40%	60%	80%	100%
T 300	ザイロン	-2.86	-1.98	-1.04	-0.04	1.04	2.19
K 149	ザイロン	-2.86	-2.11	-1.26	-0.27	0.89	2.26
M 35 J	ザイロン	-2.86	-1.98	-1.17	-0.03	0.27	0.92

(注) 三軸織物の厚さ : 0.1 mm、 $V_f = 60\%$

同様に、表 4 の結果から求めた熱膨張率がゼロのハイブリッド率を表 5 に示す。

表 - 5 : 面内熱膨張係数がゼロの場合の繊維 A と繊維 B の重量比率と弾性率

繊維の種類		繊維の重量 (%)		弾性率 (kg/mm ²)
繊維 A	繊維 B	繊維 A	繊維 B	
T 300	ザイロン	60.7	39.3	5,729
K 149	ザイロン	65	35	5,038
M 35 J	ザイロン	72.1	27.9	7,221

10 (注) 三軸織物の厚さ : 0.1 mm、 $V_f = 60\%$

(b) 表 6 に上記式によって計算した厚さ 0.2 mm の三軸織物からなる複合材料のハイブリッド率と熱膨張係数との関係を示す。

表 - 6 : 繊維のハイブリッド率と三軸織物の面内熱膨張係数 (単位 : ppm/°C)

繊維の種類		ハイブリッド率 (%) = 繊維 A の重量 / (繊維 A の重量 + 繊維 B の重量) × 100					
繊維 A	繊維 B	0%	20%	40%	60%	80%	100%
T 300	ザイロン	-2.80	-1.94	-1.02	-0.03	1.05	2.22
K 149	ザイロン	-2.80	-2.08	-1.24	-0.26	0.90	2.31
M 35 J	ザイロン	-2.80	-1.95	-1.16	-0.42	0.28	0.95

(注) 三軸織物の厚さ : 0.2 mm、 V f = 60 %

同様にして、表 6 の結果から求めた熱膨張係数がゼロのハイブリッド率を表 7 に示す。

5 表 - 7 : 面内熱膨張率がゼロの場合の繊維 A と繊維 B の重量比率と弾性率

繊維の種類		繊維の重量 (%)		弾性率 (kg/mm ²)
繊維 A	繊維 B	繊維 A	繊維 B	
T 300	ザイロン	60.6	39.4	5,713
K 149	ザイロン	64.8	35.2	5,028
M 35 J	ザイロン	71.8	28.2	7,168

(注) 三軸織物の厚さ : 0.2 mm、 V f = 60 %

以上の例では、マトリックスとしてエポキシ樹脂を用いたが、適切な特性を有するものであれば熱可塑性樹脂等の各種の樹脂をマトリックスとして用いることができる。また、樹脂に限らず、金属などのいわゆる複合材料のマトリックスとして使用されて同様に機能するものに適用できることは明らかである。

更に、これらの樹脂などの熱膨張係数を調整することも有効であって、このために樹脂中に各種のフィラーを混合して熱膨張係数を始めとする樹脂特性を調整しても良い。

なお、これらの例では、繊維強化樹脂複合材料として面内疑似等方性とした上で、その線膨張係数を等方性に行っているが、実用上はこれらの線膨張係数に対する要

請が方向によって異なる場合もあるが、その場合は以上を開示した繊維束やプリプレグの組合せを調整して応ずれば良い。

産業上の利用可能性

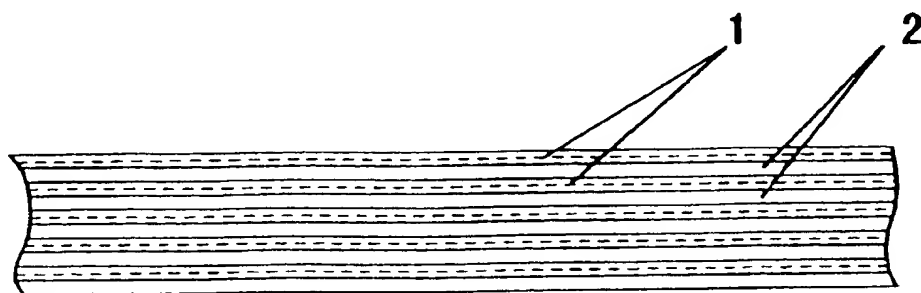
- 以上のように、本発明にかかる繊維強化樹脂複合材料は、種々の特性を有し、
- 5 線膨張係数の異なる強化繊維とマトリックス樹脂とをそれぞれ組合せて、線膨張係数を調整することにより、線膨張係数の抑制された、好ましい特性を有する繊維強化樹脂複合材料を得ることができるのであり、温度変化や温度差に伴う熱膨張により影響を受ける、精密機器や航空・宇宙環境に用いられる構造材や部品などに広く用いることができる。

請 求 の 範 囲

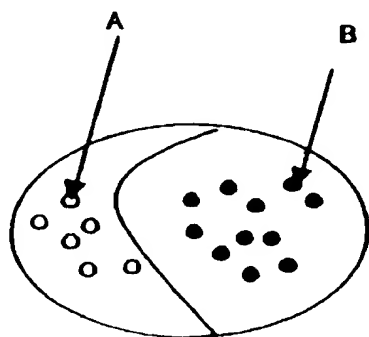
1. 少なくとも一つは負の線膨張係数を有する強化繊維を含む二種以上の強化繊維を組み合わせることにより、各々の線膨張係数を調整した一又は二以上の強化繊維からなるシートを組み合わせ、線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料。
2. 上記二種以上の強化繊維が、単独、若しくは合糸され合撚又は混合されてストランドとされていることを特徴とする請求項 1 記載の線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料。
3. 撚糸、二軸、又は三軸織物等の立体構造によってその線膨張係数を調整してなる一又は二以上の強化繊維から成るシートを組み合わせ、線膨張係数を抑制した請求項 1 又は 2 記載の面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料。
4. 少なくとも一つは負の線膨張係数を有する、二以上の線膨張係数の異なる強化繊維からそれぞれ形成した線膨張係数の異なる二以上の繊維強化シートを組み合わせ、線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料。
5. 請求項 1 乃至 4 記載の組み合わせからなる線膨張係数を抑制した面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料。
6. 請求項 1 乃至 5 記載の面内疑似等方性繊維強化樹脂複合材料を形成するための、線膨張係数を調整された、ヤーンプリプレグ、一方向プリプレグ、二軸織物・三軸織物又は四軸織物、或いはこれらから形成されたプリプレグ。



第 1 図



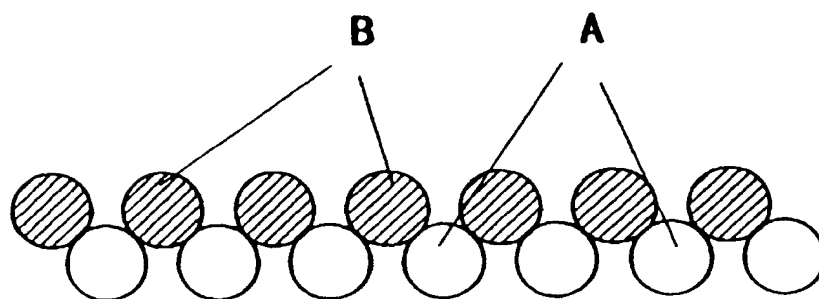
第 2 図



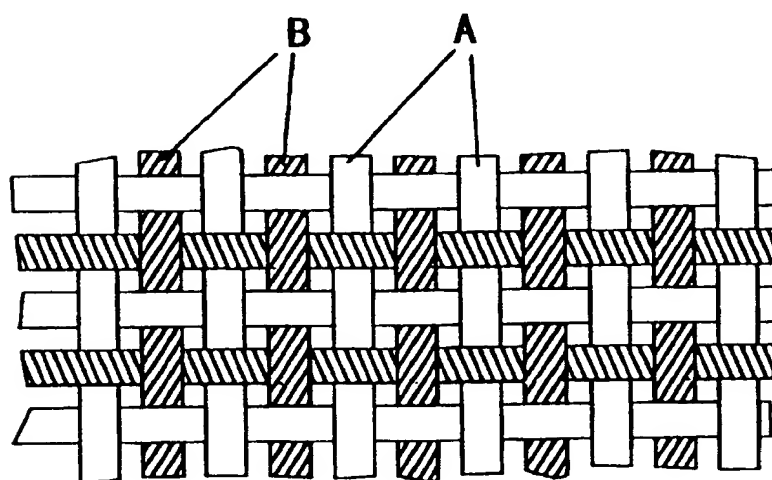


第3図

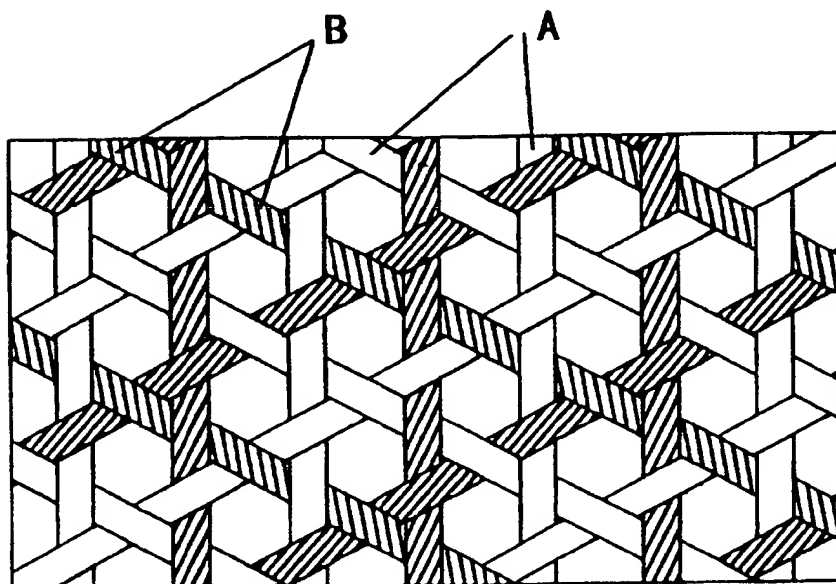
(a)



(b)

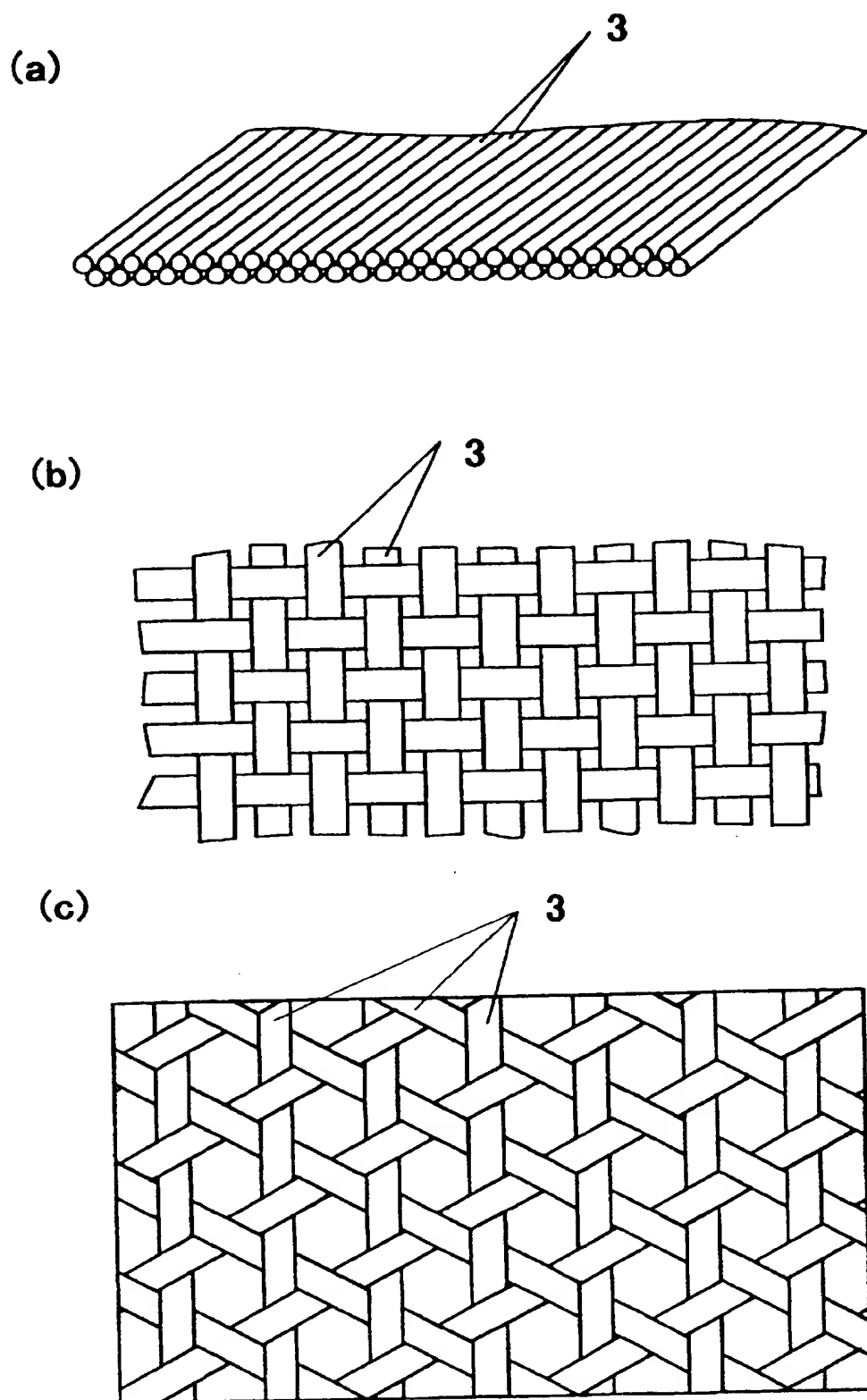


(c)





第4図





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02652

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B32B5/28, B29B11/16, C08J5/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,
C08J5/04-5/10, C08J5/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1995

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y ₁	JP, 5-254048, A (Asahi Schwebel Co., Ltd.), 05 October, 1993 (05.10.93) (Family: none)	1-6
Y ₁	JP, 58-193144, A (Hitachi, Ltd.), 10 November, 1983 (10.11.83) (Family: none)	1-6
Y ₂	JP, 4-140127, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 14 May, 1992 (14.05.92) (Family: none)	1-6
Y ₂	JP, 51-14969, A (Fuji Heavy Industries Ltd.), 05 February, 1976 (05.02.76) (Family: none)	1-6
Y ₂	JP, 50-12174, A (TRW Inc.), 07 February, 1975 (07.02.75) (Family: none)	1-6
Y ₂	US, 5312670, A (Kuang-Ming Wu, Brian L.Avery), 17 May, 1994 (17.05.94) (Family: none)	1-6
Y ₂	US, 5654077, A (Kuang-Ming Wu, Brian L.Avery), 05 August, 1997 (05.08.97) (Family: none)	1-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
17 July, 2000 (17.07.00)Date of mailing of the international search report
01 August, 2000 (01.08.00)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B32B5/28, B29B11/16, C08J5/24

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,
C08J5/04-5/10, C08J5/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2000年

日本国公開実用新案公報 1971-1995年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y ₁	J P, 5-254048, A (旭シュエーベル株式会社) 5. 10 月. 1993 (05. 10. 93) ファミリーなし	1-6
Y ₁	J P, 58-193144, A (株式会社日立製作所) 10. 11 月. 1983 (10. 11. 83) ファミリーなし	1-6
Y ₂	J P, 4-140127, A (三菱重工業株式会社) 14. 5月. 1992 (14. 05. 92) ファミリーなし	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

17. 07. 00

国際調査報告の発送日

01.08.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

川端 康之

印

4 S 9156

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

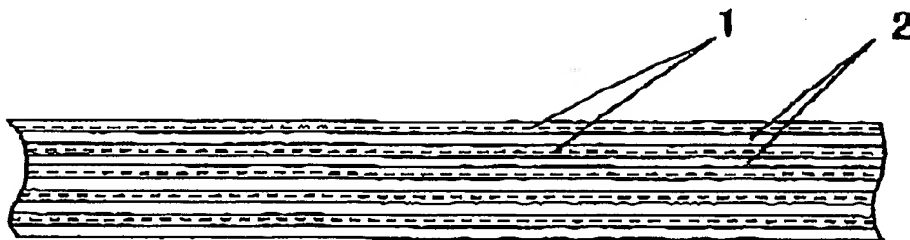
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y ₂	JP, 51-14969, A (富士重工業株式会社) 5. 2月. 1976 (05. 02. 76) ファミリーなし	1-6
Y ₂	JP, 50-12174, A (テー・アール・ダブリュ・インコー ポレイテッド) 7. 2月. 1975 (07. 02. 75) ファミリー なし	1-6
Y ₂	US, 5312670, A (Kuang-Ming Wu, Bri an L. Avery) 17. May. 1994 (17. 05. 9 4) ファミリーなし	1-6
Y ₂	US, 5654077, A (Kuang-Ming Wu, Bri an L. Avery) 5. Aug. 1997 (05. 08. 9 7) ファミリーなし	1-6



(51) 国際特許分類 B32B 5/28, B29B 11/16, C08J 5/24		A1	(11) 国際公開番号 WO00/64668
			(43) 国際公開日 2000年11月2日(02.11.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/02652		(74) 代理人 入交孝雄(IRIMAJIRI, Takao) 〒160-0022 東京都新宿区新宿1-24 ルネ御苑プラザ601 Tokyo, (JP)	
(22) 国際出願日 2000年4月24日(24.04.00)			
(30) 優先権データ 特願平11/116270 1999年4月23日(23.04.99) JP		(81) 指定国 JP, US, 欧州特許 (DE, ES, FR, GB, IT)	
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) サカセ・アドテック株式会社 (SAKASE ADTECH CO., LTD.)(JP/JP) 〒910-0363 福井県坂井郡丸岡町下安田14-10 Fukui, (JP)		添付公開書類 図解調査報告書	
(72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 久保村隆二(KUBOMURA, Kenji)(JP/JP) 〒921-8163 石川県金沢市横川2丁目97 サンピア横川308 Ishikawa, (JP)			
渡邊秋人(WATANABE, Akihito)(JP/JP) 〒910-0363 福井県坂井郡丸岡町下安田14-10 サカセ・アドテック株式会社内 Fukui, (JP)			

(54) Title: FIBER-REINFORCED RESIN COMPOSITE MATERIAL HAVING REDUCED COEFFICIENT OF LINEAR EXPANSION

(54) 発明の名称 低線膨張係数繊維強化樹脂複合材料



(57) Abstract

A fiber-reinforced resin composite material which comprises an in-plane pseudoisotropic plate formed by providing two or more types of reinforcing fibers at least one of which has a negative coefficient of linear expansion, preparing a prepreg sheet comprising a combination of such fibers and laminating such sheets, and is adjusted to have a reduced coefficient of linear expansion, in particular, to have the coefficient of zero. The coefficient of linear expansion of the composite material is adjusted to be as small as possible in the course of manufacture of the material using various means, that is, by yarn doubling or comingling of a combination of two or more types of reinforcing fibers, by combining various prepreg sheets formed from the resultant fiber bundles, by preparing a fiber bundle having a predetermined coefficient by yarn doubling or the like, by changing the three-dimensional structure of doubled fibers, woven fabric or the like, or by a combination of the above.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02652

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl.⁷ B32B5/28, B29B11/16, C08J5/24

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl.⁷ B32B1/00-35/00, B29B11/16, B29B15/08-15/14,
C08J5/04-5/10, C08J5/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-2000

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1995

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y ₁	JP, 5-254048, A (Asahi Schwebel Co., Ltd.), 05 October, 1993 (05.10.93) (Family: none)	1-6
Y ₁	JP, 58-193144, A (Hitachi, Ltd.), 10 November, 1983 (10.11.83) (Family: none)	1-6
Y ₂	JP, 4-140127, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 14 May, 1992 (14.05.92) (Family: none)	1-6
Y ₂	JP, 51-14969, A (Fuji Heavy Industries Ltd.), 05 February, 1976 (05.02.76) (Family: none)	1-6
Y ₂	JP, 50-12174, A (TRW Inc.), 07 February, 1975 (07.02.75) (Family: none)	1-6
Y ₂	US, 5312670, A (Kuang-Ming Wu, Brian L. Avery), 17 May, 1994 (17.05.94) (Family: none)	1-6
Y ₂	US, 5654077, A (Kuang-Ming Wu, Brian L. Avery), 05 August, 1997 (05.08.97) (Family: none)	1-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family
---	--

Date of the actual completion of the international search
17 July, 2000 (17.07.00)Date of mailing of the international search report
01 August, 2000 (01.08.00)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

